

Title	二電子励起について(「励起子」,研究会報告)
Author(s)	秋元, 興一
Citation	物性研究 (1970), 14(1): A18-A21
Issue Date	1970-04-20
URL	http://hdl.handle.net/2433/88102
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	publisher

佐々木泰三・秋本興一

- 13) D.Blechschiidt et al., DESY 69/27, Aug. 1969
- 14) D.Blechschiidt et al., DESY 69/47, Nov. 1969
- 15) R.Haeusel et al., DESY 69/24, July 1969.
- 16) H.Fujita et al., Phys. Rev. Lett.
- 17) 物性研短期研究会「高エネルギー光物性（絶縁体の光学的性質）」
1970. 1月29-30日.
- 18) P.H.Metzger, J.Phys. Chem. Solids. 26 (1965) 1879
- 19) 齋藤¹⁷⁾ および, 江尻他, 物理学会. 昭 45. 4月. (1aTB4)
- 20) 佐々木他, 物理学会. 昭 45. 4月. (1aTB4)
- 21) T.M.Zimkina and A.P.Lukirskii, Sov. Phys-Solid
state, 7 (1965) 1170, 1175

二電子励起について

東大物性研 秋 元 興 一

半導体やイオン結晶の分光学的性質を説明するのに, Wannier 励起子の概念と有効質量方程式による取扱いが大きな成功を収めてきたが, 一方, それらの枠内では説明しきれない種々の多体効果が存在する。最近 SOR 分光で, その存否はともかく注目を浴びるようになった二電子励起もその一例である。この問題はすでに宮川氏 (1962) と Hermanson (1968) によつて, いずれも豊沢氏の electronic polaron モデルに基いて取扱われている。すなわち, フォトンによつて作られた電子・正孔対が結晶の分極場 (縦励起子から成るボソン場と考える) と相互作用してこれを分極する, という二次の過程によつて二電子励起状態に到ると考えられる。この相互作用を繰込んだ電子・正孔対に有効質量近似を適用し, 光吸収の遷移確率を求める。彼らは二つの 1s 励起子への遷移確率と, 一つの 1s 励起子へのそれとの比を計算しているが, 手法や近似の違いから評価の一致はみられて

いない。(アルカリハライドで $10^{-3} \sim 1$)^{*)}

ところで励起子は元々、電磁場との相互作用によつて励起された多電子系の励起状態として定義されるべきものであるから、多電子系ハミルトニアンから励起子を正しく renormalize すれば、付随するいわゆる多体効果もそこに自ら含まれるはずである。ここではそのような励起子理論の formulation を、複雑な多体問題の手法を用いることなく試みたい。

そのために、多電子系のハミルトニアンを (1) 三重に縮重した価電子帯と縮重のない伝導帯の一電子 Bloch 状態を基底に書下し、(2) バンド間の電子・正孔対の生成・消滅演算子 (近似的にボソン) を用いて書改め、(3) この演算子の二次形式までを問題にする。まず、電子密度演算子 $\rho_{\mathbf{q}}$ がバンド間の部分 $\rho_{\mathbf{q}}^{(1)}$ とバンド内の部分 $\rho_{\mathbf{q}}^{(2)}$ から成ることに注目して、電子間のクーロン相互作用を次の三項に分ける。

$$H_1 = \sum' (V_{\mathbf{q}}/2) \rho_{\mathbf{q}}^{(1)} \rho_{-\mathbf{q}}^{(1)}$$

$$H_2 = \sum' (V_{\mathbf{q}}/2) \rho_{\mathbf{q}}^{(2)} \rho_{-\mathbf{q}}^{(2)}$$

$$H_{12} = \sum' (V_{\mathbf{q}}/2) (\rho_{\mathbf{q}}^{(1)} \rho_{-\mathbf{q}}^{(2)} + \rho_{\mathbf{q}}^{(2)} \rho_{-\mathbf{q}}^{(1)})$$

電子・正孔対の生成演算子 $a_{\mathbf{k}}^+(\mathbf{q})$ (Bloch 状態 $|v\mathbf{k}\rangle$ の電子を $|c\mathbf{k}+\mathbf{q}\rangle$ に励起する) を導入するなら $\rho_{\mathbf{q}}^{(1)}$ は a^+ と a の一次形式、 $\rho_{\mathbf{q}}^{(2)}$ は effective に a^+ と a の二次形式に書ける。従つて H_1 は a^+ と a の二次、 H_2 も二次に還元される部分を含む。交換相互作用 H_2 が励起子を、 H_1 は縦励起子—横励起子の分裂とプラズマモードを、 H_{12} は励起子の電子・正孔間クーロン相互作用の遮蔽を与える。(H_1 のみ残せば通常の RPA と形式的に一致する。) 運動エネルギー項 H_0 と H_2 ($= - \sum' V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} a_{\mathbf{k}}^+(\mathbf{q}) a_{\mathbf{k}'}(\mathbf{q})$) とを対角に

*) 最近、宮川氏は二電子励起が実際に観測されるか否かは、その振動子強度が大きいかどうかということよりむしろ、二電子励起状態と一電子励起連続帯との重なりによる干渉効果 (いわゆる Fano 効果) によつて共鳴型ピークを生ずるかどうかに依存する、と指摘している。(1970年2月「高エネルギー光物性」短期研究会)

するモードは a^+ の一次形式であるが、その係数 $\phi_k(q)$ が重心運動量 q を持つ励起子の envelope 関数 (k -表示) であり、その従う方程式が有効質量方程式に他ならない。この段階では、各モードはバンドの縮重を反映して三重に縮重している。次に、ここに対角化した表示の下に、 $H_0 + H_1 + H_2$ を対角化すると、 H_1 によつて、三重に縮重した各励起子の一つが縦モードとして高エネルギー側へ分離し、同時に連続帯内にプラズマモードを生ずる。これら縦モードはいずれも a^+ と a の一次形式であるが、横モードは H_1 によつて影響を受けない。

一方、バンド間密度とバンド内密度の相互作用項 H_{12} はボソンの三次以上の項であるが、これをカノニカル変換

$$H \rightarrow \bar{H} = e^{-S} H e^S, \quad H_{12} + [H_0 + H_1, S] = 0$$

によつて消去し、二次に還元出来る部分を取込む。変換によつて \bar{H} には新たな項

$$\frac{i}{2} \int_0^\infty [H_{12}, H_{12}(t)] e^{-\delta t} dt \quad (\delta \rightarrow 0)$$

が付加わるが、これは、(1) $\rho_q^{(1)}$ と $\rho_{q'}^{(2)}$ が交換可能 (q または q' が小さい所でよい)、(2) $\rho_q^{(2)}$ の時間変化を無視する (バンド巾がギャップに比べて小さければよい) とすれば、

$$\sum' (V_q/2) [\epsilon_{\text{RPA}}(q, \omega=0)^{-1} - 1] \rho_q^{(2)} \rho_{-q}^{(2)}$$

となり、 H_2 と合わせれば電子・正孔間の遮蔽されたクーロン相互作用を与える。(長距離性は失われない。) 励起子は \bar{H} の固有モードとして新たに定義しなおされるが、形式的には H_{12} のない場合と同様である。

さて、光に対する応答を表わす遷移確率は、横電流密度 $j_{q+}(q \rightarrow 0)$ の、 H の固有状態 $|n\rangle$ に関する行列要素を用いて与えられるが、これは上に変換された \bar{H} の固有状態 $|\bar{n}\rangle$ を用いるなら

$$\begin{aligned} \langle n | j_q | 0 \rangle &= \langle \bar{n} | e^{-S} j_q e^S | \bar{0} \rangle \\ &= \langle \bar{n} | j_q | \bar{0} \rangle + \langle \bar{n} | [j_q, S] | \bar{0} \rangle + \dots \end{aligned}$$

となる。 $j_{q\perp}^{(1)}$ は一つの横モードを励起し、 $j_{q\perp}^{(2)}$ と $[j_{q\perp}^{(1)}, S]$ は一つの横モードと一つの縦モードを同時に励起する部分である。すなわち、 $j_q^{(1)}$ は元々 a^+ と a の一次形式、 $j_q^{(2)}$ は二次形式で書かれているのであるが、今その $q \rightarrow 0$ の時の横成分を励起子モード $b_{\nu}^{+}(q)$ を用いて表わすならば

$$\begin{aligned} j_{\perp}^{(1)} &= \sum_{\nu} J_{\nu}(0) [b_{\nu}^{+}(0)_{\perp} - b_{\nu}(0)_{\perp}] \\ j_{\perp}^{(2)} &= \sum_{\nu\nu'} \sum_{q'} J_{\nu\nu'}(q') b_{\nu}^{+}(q')_{\perp} \\ &\quad \times \sum_{\nu''} [b_{\nu''}^{+}(-q') // v_{\nu''\nu'} - b_{\nu''}(q') // u_{\nu''\nu'}] \\ [j_{\perp}^{(1)}, S] &= \sum_{\nu\nu'} \sum_{q'} I_{\nu\nu'}(q') [b_{\nu}^{+}(q')_{\perp} + b_{\nu}(-q')_{\perp}] \\ &\quad \times [b_{\nu'}^{+}(-q') // - b_{\nu'}(q') //] \end{aligned}$$

の形になり、 $j_{\perp}^{(1)}$ は励起状態 $b_{\nu}^{+}(0)_{\perp} |0\rangle$ と、 $j_{\perp}^{(2)}$ と $[j_{\perp}^{(1)}, S]$ は励起状態 $b_{\nu}^{+}(q')_{\perp} b_{\nu'}^{+}(q') // |0\rangle$ と、基底状態 $|0\rangle$ の間に行列要素を持つ。後二者の前者に対する比は Bloch 関数の性格によつてかなり変化するが、どの励起子対についても励起子の特性的なエネルギー（束縛エネルギー、縦一横モードの分裂の大きさ、励起帯の巾）とバンドギャップの比程度の縮小を受ける。ただし、同時励起する縦モードがプラズマモードである場合は、この比はそれ程小さくはないものと思われる。なお、 $[j_{\perp}^{(1)}, S]$ の部分からの二電子励起への寄与は Hermanson らのものと本質的には同じものと思われるが、 $j_{\perp}^{(2)}$ からの寄与は新たなものであろう。

磁性体光物性の諸問題 (I)

東大物性研 菅 野 暁

磁性化合物の光物性研究は、1965年に 2-magnon, exciton+magnon 吸収が発見されて、急激に発展した。しかし、初期の頃は電子励起を励起子と